

УДК 535.37

В. ПЛЕХАНОВ, В. РЯТТЕ

ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ КРИСТАЛЛОВ $PbBr_2$ ПРИ ДВУХФОТОННОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

V. PLEKHANOV, V. RÄTTE. $PbBr_2$ KRISTALLIDE LUMINESTSENTS KAHFOOTONILISE
ERGASTUSE KORRAL

V. PLEKHANOV, V. RÄTTE. LUMINESCENCE OF $PbBr_2$ CRYSTALS UNDER TWO-PHOTON
EXCITATION

(Представил К. К. Ребане)

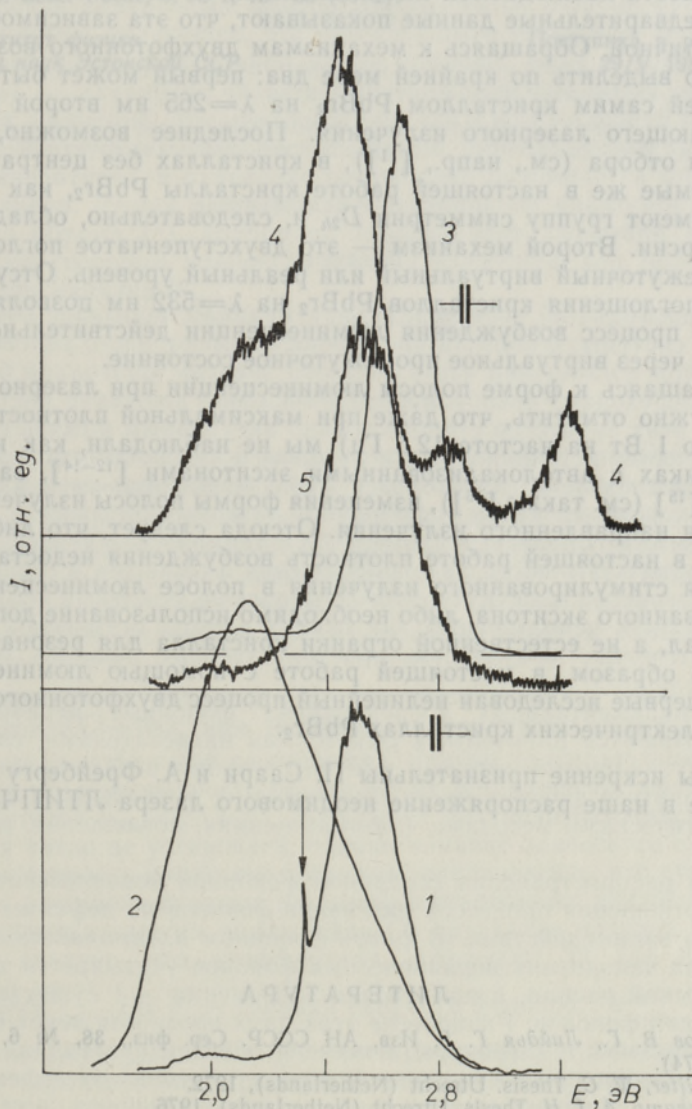
Растущие запросы квантовой электроники, нелинейной оптики и бес-
серебряной фотографии стимулируют исследование характеристик ши-
рокого класса веществ, причем особый интерес представляют их нели-
нейные свойства.

В настоящем сообщении изложены результаты первых эксперимен-
тов по изучению нелинейных свойств диэлектрических кристаллов $PbBr_2$.
Люминесцентным методом исследован процесс двухфотонного поглоще-
ния кристаллов $PbBr_2$ при возбуждении их второй гармоникой неодимого
лазера ЛТИПЧ ($\lambda=532$ нм, $E=2,33$ эВ). Хотя до сих пор отсутствуют
расчеты зонной структуры этих кристаллов, их электронные возбуждения
методами линейной спектроскопии достаточно полно изучены к настоя-
щему времени (см., напр., [1-5]).

В экспериментах использовались свежевыколотые при красном свете
пластины из объемных монокристаллов, которые во избежание фото-
лиза [6] подвергались облучению видимым или ультрафиолетовым све-
том только после охлаждения их до 4,2 К. Объекты исследования уста-
навливались в кристаллодержатель иммерсионного гелиевого криостата,
позволяющего при необходимости осуществить скол кристаллов непо-
средственно в жидком гелии [7]. Ослабление интенсивности (\simeq в 500
раз) лазерного излучения второй гармоники неодимого лазера осущест-
влялось с помощью нейтральных сеток. Для ослабления основного излу-
чения лазера применялись стеклянные фильтры. Диаметр лазерного луча
на объекте исследования составлял, как правило, не более 1 мм. Час-
тота следования импульсов варьировалась от 12,5 до 50 Гц. При одно-
фотонном возбуждении источником света служила ртутная лампа
(120 Вт), необходимый спектральный интервал которой выделялся двой-
ным призмным монохроматором [8]. Остальная часть эксперименталь-
ной установки, включающая спектральную аппаратуру, системы фоку-
сировки, термометрии и регистрации сигнала описана ранее [8-9].

При возбуждении в длинноволновой экситонной полосе поглощения
($E_M=3,99$ эВ при 4,2 К [1]) наблюдается интенсивная широкополосная
люминесценция (см. кривую 3 на рисунке), которая связывалась с излу-
чением автолокализованных экситонов ($E_M=2,73$ эВ при 4,2 К [1]).
Большой стоков сдвиг ($\simeq 1,2$ эВ), а также отсутствие селективных по-
лос возбуждения этой люминесценции в области прозрачности кристал-
ла позволили связать наблюдаемую люминесценцию с излучением авто-
локализованных экситонов, которое в первом приближении [1, 4] можно

представить как возбужденный ион Pb^{2+} (переход $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$) в кристаллической решетке точечной симметрии D_2 . При возбуждении фотонами с энергией в области межзонных переходов, как и ранее [1], наблюдается более длинноволновое излучение с $E_M = 2,55$ эВ (кривая 5). Уменьшение интенсивности люминесценции с $E_M = 2,73$ эВ, по-видимому, свидетельствует о том, что либо с ростом кинетической энергии электронно-дырочных пар вероятность их связывания в экситон уменьшается, либо же автолокализованный экситон имеет еще одно состояние, дающее более длинноволновое, чем 2,73 эВ, излучение. При возбуждении в области прозрачности кристалла PbB_2 спектр люминесценции претерпевает



Спектры люминесценции кристаллов PbB_2 при 4,2 К и при двух- (1) и однофотонном (3, 4, 5) возбуждении. Энергия возбуждающих фотонов при однофотонном возбуждении: $E_{возб.} = 4,05$ (3); 3,64 (4) и 4,674 эВ (5). Кривая 2 — спектр туннельной люминесценции после двухфотонного лазерного возбуждения. Стрелкой отмечена возбуждающая линия лазера.

еще более разительные изменения (см. кривую 4). Отметим в этом спектре полосу люминесценции с $E_M = 3,36$ эВ, которой авторы работ [2-3] приписывали собственное происхождение.

При лазерном возбуждении спектр люминесценции (кривая 1) кристаллов $PbVg_2$ имеет структуру, аналогичную* структуре спектра при однофотонном возбуждении (кривая 5) с $E_{возб.} = 4,674$ эВ. Большой антистоксовый сдвиг кривой 1 (спектральное положение лазерной линии указано стрелкой на рисунке), а также тот факт, что энергия возбуждающих фотонов лазерного луча лежит много длинноволнее края фундаментального поглощения (на $\simeq 1,7$ эВ), указывают на проявление нелинейного механизма в процессе возбуждения люминесценции. Это заключение находит дальнейшее подтверждение в нелинейной зависимости интенсивности наблюдаемой люминесценции от плотности возбуждения. Наши предварительные данные показывают, что эта зависимость близка к квадратичной. Обращаясь к механизмам двухфотонного возбуждения, их можно выделить по крайней мере два: первый может быть связан с генерацией самим кристаллом $PbVg_2$ на $\lambda = 265$ нм второй гармоники возбуждающего лазерного излучения. Последнее возможно, согласно правилам отбора (см., напр., [11]), в кристаллах без центра инверсии. Исследуемые же в настоящей работе кристаллы $PbVg_2$, как уже отмечалось, имеют группу симметрии D_{2h} и, следовательно, обладают центром инверсии. Вторым механизм — это двухступенчатое поглощение через промежуточный виртуальный или реальный уровень. Отсутствие заметного поглощения кристаллов $PbVg_2$ на $\lambda = 532$ нм позволяет заключить, что процесс возбуждения люминесценции действительно двухступенчатый через виртуальное промежуточное состояние.

Возвращаясь к форме полосы люминесценции при лазерном возбуждении, нужно отметить, что даже при максимальной плотности возбуждения (до 1 Вт на частоте 12,5 Гц) мы не наблюдали, как и в других диэлектриках с автолокализованными экситонами [12-14], за исключением Хе [15] (см. также [16]), изменения формы полосы излучения их или появления направленного излучения. Отсюда следует, что либо использованная в настоящей работе плотность возбуждения недостаточна для получения стимулированного излучения в полосе люминесценции автолокализованного экситона, либо необходимо использование дополнительных зеркал, а не естественной огранки кристалла для резонатора.

Таким образом, в настоящей работе с помощью люминесцентного метода впервые исследован нелинейный процесс двухфотонного поглощения в диэлектрических кристаллах $PbVg_2$.

Авторы искренне признательны П. Саари и А. Фрейбергу за предоставление в наше распоряжение неодимового лазера ЛТИПЧ.

ЛИТЕРАТУРА

1. Плеханов В. Г., Лийдья Г. Г. Изв. АН СССР. Сер. физ., 38, № 6, 1304—1306 (1974).
2. De Gruijter, W. C. Thesis. Utrecht (Netherlands), 1972.
3. Eijkelenkamp, A. J. H. Thesis. Utrecht (Netherlands), 1976.
4. Wada, K. J. Sci. Light, 26, № 2, 77—97 (1977).
5. Bruce, A. J., Duffy, J. A. Thin Solid Films, 101, № 2, 179—192 (1983).

* Аналогична также температурная зависимость интенсивности этой люминесценции при одно- и двухфотонном возбуждении. Более того, как и при однофотонном возбуждении [10], спектр туннельной люминесценции (кривая 2) при однофотонном возбуждении также уширен и сдвинут в длинноволновую сторону.

6. Шарый В. М., Плеханов В. Г., Михайловская Е. В. Ж. прикл. спектроскопии, 22, № 3, 551—553 (1975).
7. Plekhanov, V. G., Emel'yanenko, A. V., Grinfelds, A. U. Phys. Lett., A101, № 5/6, 291—294 (1984).
8. Plekhanov, V. G. Proc. Int. Conf. Lasers'80. STS Press (USA), 1981, 94—99.
9. Zavt, G. S., Plekhanov, V. G., Hizhnyakov, V. V., Shepelev, V. V. J. Phys. C: Solid State Phys., 17, № 16, 2839—2858 (1984).
10. Плеханов В. Г. Докт. дис. Тарту, 1981.
11. Нелинейная спектроскопия (ред. С. А. Ахманов). М., «Мир», 1979.
12. Князев И. Н., Кудрявцев Ю. А., Кузьмина И. П., Летохов В. С., Мовшев В. Г., Молчанов А. Г. Физ. твердого тела, 18, № 12, 3593—3598 (1976).
13. Boyd, R. W., Malcuit, M. B., Teegarden, K. J. IEEE-QE, 18, № 8, 1202—1208 (1982).
14. Cingolani, A., Ferrara, M., Lugara, M., Avlijas, T. Phys. Rev. B: Condens. Matter, 30, № 4, 2229—2231 (1984).
15. Басов Н. Г., Данилычев В. А., Попов Ю. М., Ходкевич Д. Д. Письма в ЖЭТФ, 12, № 10, 473—474 (1970).
16. Teller, E. Laser Focus, 8, № 7, 18—35 (1972).

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
29/V 1986